

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-308286

(43)Date of publication of application : 17.11.1998

(51)Int.Cl.

H05B 33/26

H05B 33/22

(21)Application number : 09-134358

(71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing : 08.05.1997

(72)Inventor : SAKAEDA NOBORU

## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT LIGHT EMITTING DEVICE

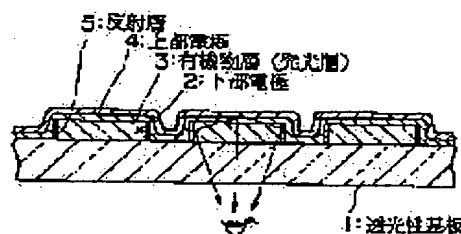
## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a device, which has excellent light emitting efficiency and in which generation of effuse of light and light emission failure is lowered and which has excellent visibility, by laminating a lower electrode pattern, an organic material layer including a light emitting layer, and an upper electrode pattern in order on a transparent substrate, and providing a light reflecting layer for reflecting the visible light, which has a specified wave length, in at least one side surface of the lower electrode pattern.

**SOLUTION:** A lower electrode (pattern) 2, an organic material layer 3 including a light emitting layer, and an upper electrode (pattern) 4 are laminated in order on a transparent substrate 1 such as a glass board so as to form an organic electroluminescent light emitting device.

A light reflecting layer 5 for reflecting the visible light, which has a wave length at 400-700 nm, is arranged in at least one side surface of the lower electrode 2.

Namely, the reflecting layer 5 always exists in a side surface of the lower electrode 2, and all clearances between the lower electrodes 2 are filled with the reflecting layer 5 at need. The light from the organic material layer 3, which includes the light emitting layer, is reflected by the side surface of the lower electrode 2, and provides it to the sight of human being.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 10 - 308286

(43) 公開日 平成 10 年 (1998) 11 月 17 日

(51) Int. Cl.

H05B 33/26

33/22

識別記号

庁内整理番号

F I

H05B 33/26

33/22

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 5 F D (全 18 頁)

(21) 出願番号 特願平 9 - 134358

(22) 出願日 平成 9 年 (1997) 5 月 8 日

(71) 出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内 3 丁目 1 番 1 号

(72) 発明者 柴田 暢

千葉県袖ヶ浦市上泉 1280 番地

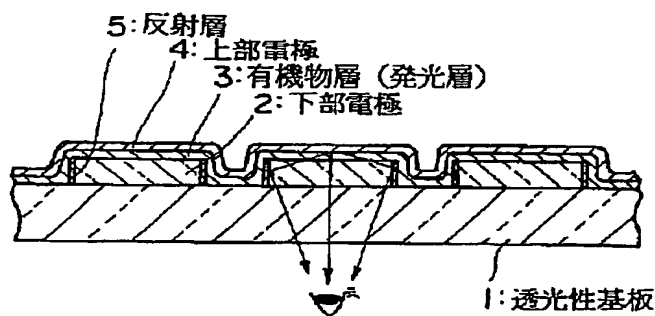
(74) 代理人 弁理士 渡辺 喜平 (外 1 名)

(54) 【発明の名称】 有機 E L 発光装置

(57) 【要約】

【課題】 発光効率に優れるとともに、光のにじみや発光欠陥の発生が少なく視認性に優れた有機 E L 発光装置を提供する。

【解決手段】 透光性基板 1 上に、下部電極パターン 2 と、発光層を含む有機物層 3 と、上記電極 4 とを順次積層してなる有機 E L 発光装置において、下部電極パターン 2 の少なくとも側面に波長 400 ~ 700 nm の可視領域の光の反射層 5 が配設されてなることを特徴とする有機 E L 発光装置。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 透光性基板上に、下部電極パターンと、発光層を含む有機物層と、上部電極パターンとを順次積層してなる有機 E L 発光装置において、

下部電極パターンの少なくとも側面に波長 4 0 0 ~ 7 0 0 n m の可視領域の光の反射層が配設されてなることを特徴とする有機 E L 発光装置。

【請求項 2】 前記下部電極パターンの断面形状が、透光性基板側に向って、漸次または段階的に拡大されてなることを特徴とする請求項 1 記載の有機 E L 発光装置。

【請求項 3】 前記下部電極パターン間の間隙に、下部電極パターンによる凹凸を平坦化するように平坦化層が充填されてなることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の有機 E L 発光装置。

【請求項 4】 前記反射層および／または平坦化層の、波長 4 0 0 ~ 7 0 0 n m の可視領域における光の透過率が、1 0 % 以下であることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載の有機 E L 発光装置。

【請求項 5】 前記下部電極パターンの膜厚が、0 . 2 μ m 以上であることを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項記載の有機 E L 発光装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】本発明は有機 E L 発光装置に関する。さらに詳しくは、民生用、工業用の表示機器、カラーディスプレイ等に好適に用いられる有機 E L 発光装置に関する。

## 【0 0 0 2】

【従来の技術】E L 素子は、自己発光のため、視認性が高く、また完全固体のため耐衝撃性に優れるという特徴を有しており、また、薄膜の面発光素子であるため薄型軽量の発光装置として開発が進められている。E L 素子は、無機や有機化合物を発光層として用いているが、特に有機化合物を二つの電極に挟んでなる有機 E L 素子は有機化合物の種類が豊富で様々な色の光を高効率、高輝度で発光するので、次世代の発光装置としての期待は大きい。

【0 0 0 3】有機 E L 発光装置としては、二つの電極すなわち上部電極と下部電極との間に発光層を含む有機化合物を挟み、各電極にそれぞれ極性の異なる電圧を印加することによって発光層を中心に発光するが、例えば、ストライプ状の上部電極パターンおよび下部電極パターンを直交させることによりその交差部分が発光し、(X-Y ドットマトリックス型、図 6)、各ストライプ電極に任意に電圧を印加することによって任意な表示が可能となることは一般によく知られている。

【0 0 0 4】この際、上部電極または下部電極のいずれかを透明とすることによって、有機 E L 素子の発光を外部へ取出すことができる。特に、透光性基板上の下部電極を透明とすれば、E L の発光を透光性基板側から取出

すことができるが、図 7 に示すように下部電極が透明であれば発光層を含む有機物層からの光が下部電極の側面から漏れて損失し、効率よく光を装置の外部にいる人間の視覚に届けることができなかった。また、光のにじみが発生して、コントラストのよい表示が得られず、視認性のよい有機 E L 発光装置とはいえなかった(特開平 3 - 2 3 3 8 9 1 号公報、同 5 - 2 7 5 1 7 2 号公報等)。

【0 0 0 5】なお、発光層を無機物とした無機 E L (薄膜 E L) において、下部電極(透明電極)間に、下部電極と同様の厚さの黒色の絶縁層(酸素欠乏型 T a , O , )を有する例が開示されている(特開平 3 - 4 4 8 4 号公報)。黒色の絶縁層を有するので、光のにじみを防止し、コントラストのよい表示が得られるが、E L 素子の発光を吸収するだけなので、効率よく光を外部に取出すことはできなかった(図 8)。

## 【0 0 0 6】

【本発明を解決するための課題】本発明は、上述の問題に鑑みなされたものであり、発光効率に優れるとともに、光のにじみや発光欠陥の発生が少なく、視認性に優れた有機 E L 発光装置を提供することを目的とする。

## 【0 0 0 7】

【本発明を解決するための手段】上記目的を達成するため本発明によれば、下記の有機 E L 発光装置が提供される。

【1】透光性基板上に、下部電極パターンと、発光層を含む有機物層と、上部電極パターンとを順次積層してなる有機 E L 発光装置において、下部電極パターンの少なくとも側面に波長 4 0 0 ~ 7 0 0 n m の可視領域の光の反射層が配設されてなることを特徴とする有機 E L 発光装置。

【2】前記下部電極パターンの断面形状が、透光性基板側に向って、漸次または段階的に拡大されてなることを特徴とする【1】記載の有機 E L 発光装置。

【3】前記下部電極パターン間の間隙に、下部電極パターンによる凹凸を平坦化するように平坦化層が充填されてなることを特徴とする【1】または【2】記載の有機 E L 発光装置。

【4】前記反射層および／または平坦化層の、波長 4 0 0 ~ 7 0 0 n m の可視領域における光の透過率が、1 0 % 以下であることを特徴とする【1】~【3】のいずれかに記載の有機 E L 発光装置。

【5】前記下部電極パターンの膜厚が、0 . 2 μ m 以上であることを特徴とする【1】~【4】のいずれかに記載の有機 E L 発光装置。

## 【0 0 0 8】

【本発明の実施の形態】以下、本発明の有機 E L 発光素子の実施の形態を図面を参照しつつ具体的に説明する。

## 1. 第一の実施形態

図 1 は、本発明の有機 E L 発光装置の第一の実施形態を

模式的に示す断面図である。図 1 に示すように、本発明の有機 EL 発光装置は、透光性基板 1 上に、下部電極パターン 2 と発光層を含む有機物層 3 と、上部電極パターン 4 とを順次積層してなり、下部電極パターン 2 の少なくとも側面に波長 400 ~ 700 nm の可視領域の光の反射層 5 が配設されている。ここで、下部電極パターン 2 の少なくとも側面とは、下部電極パターンの側面に必ず反射層が存在し、必要に応じて下部電極パターン間の間隙の全てに充填されていてもよいことを意味する。このように構成することによって、発光層を含む有機物層 3 から光が下部電極パターン 2 の側面で反射して、効率よく光を外部の人間の視覚に届けることができる。すなわち、発光効率を高めることができる。また、光のにじみを防止し、コントラストのよい表示が得られ、視認性のよい有機 EL 発光装置が得られる。

#### 【0009】2. 第二の実施形態

図 2 は、本発明の有機 EL 発光装置の第二の実施形態を模式的に示す断面図である。図 2 に示すように、この実施形態では、前記下部電極パターン 2 の断面形状が、透光性基板 1 に向かって、漸次（図 2 (a)）または段階的（図 2 (b)）に拡大されている。従って、下部電極パターン 2 の側面に配設された反射層 5 は、透光性基板 1 に向かって傾斜することになる。このように構成することによって、有機物層 3 の P 点からの発光は直接的な光透過方向 L を中心に L<sub>1</sub> ~ L<sub>2</sub> の範囲に広げられる。このため、より効率よく光を外部へ取出せる上、下部電極パターン 2 上に積層した薄膜の有機物層 3 および上部電極パターン 4 のひずみを低減し、上部電極パターン 4 の断線、下部電極パターン 2 と上部電極パターン 4 との短絡を防ぎ、クロストーク（所望の発光部分以外が電極間の短絡により発光すること）等の発光欠陥を防ぐことができる。

#### 【0010】3. 第三の実施形態

図 3 は、本発明の有機 EL 発光装置の第三の実施形態を示す断面図である。図 3 に示すように、この実施形態では、前記下部電極パターン 2 間の間隙に、下部電極パターン 2 による凹凸を平坦化するように平坦化層 6 が充填されている。このように構成することによって、前記と同じように、下部電極 2 上に積層した薄膜の有機物層 3 および上部電極パターン 4 のひずみを低減し、発光欠陥を防ぐことができる。

#### 【0011】4. 第四の実施形態

図 4 は、本発明の有機 EL 発光装置の第四の実施形態を示す断面図である。図 4 に示すように、この実施形態では、前記反射層 5 および／または平坦化層 6 の、波長 400 ~ 700 nm の可視領域における光の透過率を 10 % 以下に特定している。ここで、光の透過率とは前記反射層および／または平坦化層に入射する光のエネルギーに対して、前記層を透過して出てくる光のエネルギーの比率（百分率）を意味する。このように構成することによって、隣接する下部電極パターン 2 間への有機物層 3

からの光の漏れ、および上部電極パターン 4 の間隙からの外光をほぼ完全に遮断して、光のにじみのない、よりコントラストのよい表示が得られる。

#### 【0012】5. 第五の実施形態

さらに、本発明の第五の実施形態が提案される。この実施形態では、前記下部電極パターン 2 の膜厚を 0.2 μm 以上に特定している。このように構成することによって、下部電極パターン 2 の電気抵抗が小さくなるので、有機 EL 発光表示の電圧降下による発光むらが低減するが、さらに、下部電極パターン 2 が厚膜になるので、パターン側面の反射層 5 の効果が増大する。

【0013】なお、本発明の有機 EL 発光装置を応用して、各有機物層の発光層を異なる層として、多色発光させてもよいし、透光性基板と下部電極パターンとの間に異なる蛍光体層やカラーフィルタ層を配置して多色発光させてもよい。

#### 【0014】6. 構成要素

以下、本発明の有機 EL 発光装置に用いられる構成要素を具体的に説明する。

##### (1) 透光性基板

透光性基板は、有機 EL 発光装置を支持できる平滑で電気絶縁性の基板であり、透光性すなわち波長が 400 ~ 700 nm の可視領域の光の透過率が 50 % 以上のものが好ましい。具体的には、ガラス板、より具体的には、ソーダ石灰ガラス、バリウム、ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸塩ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英ガラス等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン、ポリイミド等を挙げることができる。

##### 【0015】(2) 有機 EL 素子

本発明では、その構成を有機 EL 発光装置として記載しているが、これは表示部の個々の画素集合体すなわち有機 EL 素子の集合体を意味する。ここでは基本単位の有機 EL 素子の説明をする。また、本発明では、下部電極は透明な電極であり、以下で記載する陽極、陰極のいずれか一方が透明で有れば、それを下部電極として選ぶことができ、もう一方を上部電極として選ぶことができる。

【0016】本発明に用いられる有機 EL 素子においては、有機物層として、再結合領域および発光領域を少なくとも有するものが用いられる。この再結合領域および発光領域は、通常発光層に存在するため、本発明においては、有機物層として発光層のみを用いてもよいが、必要に応じ、発光層以外に、例えば正孔注入層、電子注入層、有機半導体層、電子障壁層、付着改善層なども用いることができる。

【0017】次に本発明に用いられる有機 EL 素子の代表的な構成例を示す。もちろん、これに限定されるもの

ではない。

①陽極／発光層／陰極

②陽極／正孔注入層／発光層／陰極

③陽極／発光層／電子注入層／陰極

④陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極

⑤陽極／有機半導体層／発光層／陰極

⑥陽極／有機半導体層／電子障壁層／発光層／陰極

⑦陽極／正孔注入層／発光層／付着改善層／陰極

などの構造を挙げることができる。これらの中で、通常

④の構成が好ましく用いられる。

【0018】(2)-1. 陽極

陽極としては、仕事関数の大きい(4eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物またはこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、ITO、SnO<sub>2</sub>、ZnO等の導電性材料が挙げられる。陽極は、これらの電極物質を蒸着法、スパッタリング法、CVP法、イオンプレーティング法、電析法、電気メッキ法、化学メッキ法等の方法で、薄膜を形成させることにより作製することができる。このように発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百Ω/□以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、本発明では通常10nm~100μm、好ましくは100nm~10μm、さらに好ましくは200nm(0.2μm)~5μmの範囲で選択される。この際の上限は、陽極パターンの精細度が増すにつれて加工上小さくする方が容易であるが、有機EL発光装置の低消費電力化(電極の低抵抗化)を鑑みると、上限を特に限定せず、0.2μm以上とすることがより好ましい。

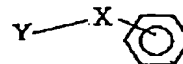
【0019】(2)-2. 発光層

有機EL素子の発光材料は主に有機化合物であり、具体的には所望の色調により次のような化合物が挙げられ

る。まず、紫外域から紫色の発光を得る場合には、下記の一般式であらわされる化合物が挙げられる。

【0020】

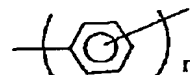
【化1】



【0021】この一般式において、Xは下記化合物を示す。

【0022】

10 【化2】



【0023】ここでnは、2、3、4または5である。また、Yは下記化合物を示す。

【0024】

【化3】



20

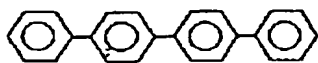
【0025】上記化合物のフェニル基、フェニレン基、ナフチル基に炭素数1~4のアルキル基、アルコキシ基、水酸基、スルホニル基、カルボニル基、アミノ基、ジメチルアミノ基またはジフェニルアミノ基等が単独または複数置換したものであってもよい。また、これらは互いに結合し、飽和5員環、6員環を形成してもよい。また、フェニル基、フェニレン基、ナフチル基にパラ位で結合したものが、結合性がよく平滑な蒸着膜の形成のために好ましい。具体的には以下の化合物である。特に、p-クォーターフェニル誘導体、p-クインクフェニル誘導体が好ましい。

【0026】

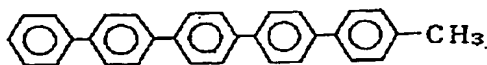
【化4】

30

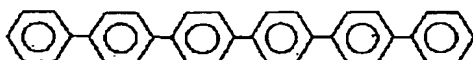
(1)

p-クォーターフェニル  
(PQP)

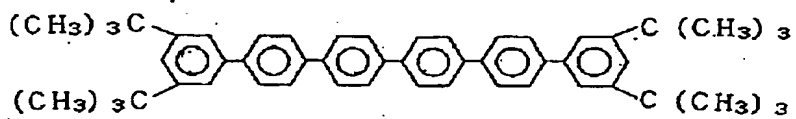
(2)



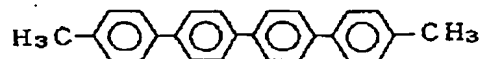
(3)



(4)

3, 5, 3'', 5''-テトラ-tert-ブチル-セキシフェニル  
(TBS)

(5)

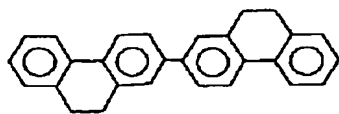


(6)

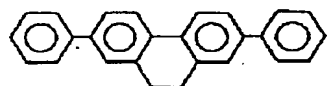
9

【 0 0 2 8 】

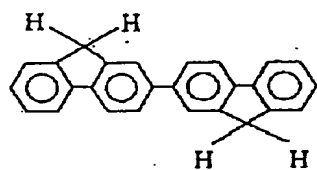
【 化 6 】



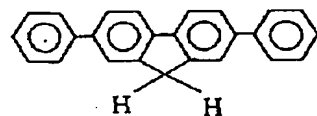
(7)



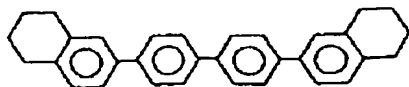
(8)



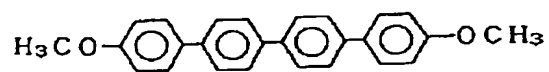
(9)



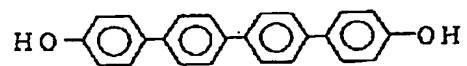
(10)



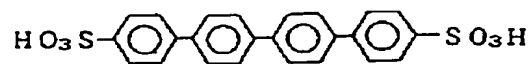
11  
(11)



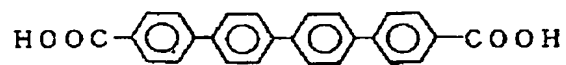
(12)



(13)



(14)

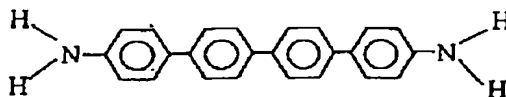


[ 0 0 2 9 ]

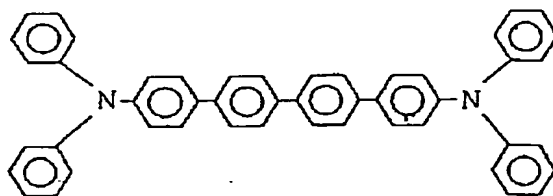
[ 化 7 ]



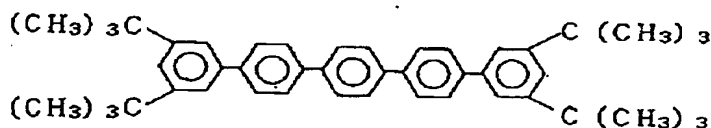
(15)



(16)



(17)



3, 5, 3', 5'-テトラ-*t*-ブチル-*p*-クインクフェニル  
(TBQ)

【0030】次に、青色から緑色の発光を得るためには、例えば、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、スチリルベンゼン系化合物を挙げることができる。

【0031】具体的に化合物名を示せば、例えば、特開昭59-194393号公報に開示されているものを挙げることができる。その代表例としては、ベンゾオキサゾール系、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系等の蛍光増白剤を挙げることができる。さらに、他の有用な化合物は、ケミストリー・オブ・シンセティック・ダイズ1971, 628~637頁および640頁に列挙されている。

【0032】前記キレート化オキシノイド化合物としては、例えば特開昭63-295695号公報に開示されているものをを用いることができる。その代表例としては、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(以下A1qと略記する)等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエピトリジオン等を挙げることができる。

【0033】また、前記スチリルベンゼン系化合物としては、例えば欧州特許第0319881号明細書や欧州

特許第0373582号明細書に開示されているものをを用いることができる。

【0034】また、特開平2-252793号公報に開示されているジスチリルピラジン誘導体も発光層の材料として用いることができる。その他のものとして、例えば欧州特許第0387715号明細書に開示されているポリフェニル系化合物も発光層の材料として用いることもできる。

【0035】さらに、上述した蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、およびスチリルベンゼン系化合物等以外に、例えば12-フタロペリノン(J. Appl. Phys., 第27巻, L713(1988年))、1,4-ジフェニル-1,3-ブタジエン、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン(以上Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、ナフタルイミド誘導体(特開平2-305886号公報)、ペリレン誘導体(特開平2-189890号公報)、オキサジアゾール誘導体(特開平2-216791号公報、または第38回応用物理学関係連合講演会で浜田らによって開示されたオキサジアゾール誘導体)、アルダジン誘導体(特開平2-220393号公報)、ピラジリン誘導体(特開平2-220394号公報)、シクロペンタ

30

40

50

ジエン誘導体（特開平 2-289675 号公報）、ピロロピロール誘導体（特開平 2-296891 号公報）、スチリルアミン誘導体（Appl. Phys. Lett., 第 56 巻, L799（1990 年））、クマリン系化合物（特開平 2-191694 号公報）、国際公開公報 WO90/13148 や Appl. Phys. Lett., vol 58, 18, P1982 (1991) に記載されているような高分子化合物等も、発光層の材料として用いることができる。

【0036】本発明では、特に発光層の材料として、芳香族ジメチリデン系化合物（欧州特許第 0388768 号明細書や特開平 3-231970 号公報に開示のもの）を用いることが好ましい。具体例としては、4, 4'-ビス（2, 2-ジ-*t*-ブチルフェニルビニル）ビフェニル、（以下、DTBPBi と略記する）、4, 4'-ビス（2, 2-ジフェニルビニル）ビフェニル（以下 DPVBi と略記する）等、およびそれらの誘導体を挙げる事ができる。

【0037】さらに、特開平 5-258862 号公報等に記載されている一般式（R, -Q）, -AL-O-L であらわされる化合物も挙げられる。（上記式中、L はフェニル部分を含んでなる炭素原子 6~24 個の炭化水素であり、O-L はフェノレート配位子であり、Q は置換 8-キノリノレート配位子を表し、R, はアルミニウム原子に置換 8-キノリノレート配位子が 2 個を上回り結合するのを立体的に妨害するように選ばれた 8-キノリノレート環置換基を表す）具体的には、ビス（2-メチル-8-キノリノレート）（パラフェニルフェノレート）アルミニウム（III）（以下 PC-7）、ビス（2-メチル-8-キノリノレート）（1-ナフトレート）アルミニウム（III）（以下 PC-17）等が挙げられる。その他、特開平 6-9953 号公報等によるドーピングを用いた高効率の青色と緑色の混合発光を得る方法が挙げられる。この場合、ホストとしては上記に記載した発光材料、ドーパントとしては、青色から緑色にまでの強い蛍光色素、例えばクマリン系あるいは上記記載のホストとして用いられているものと同様な蛍光色素を挙げる事ができる。具体的には、ホストとしてジスチリルアリーレン骨格の発光材料、特に好ましくは例えば DPVBi、ドーパントとしてはジフェニルアミノビニルアリーレン、特に好ましくは例えば N, N-ジフェニルアミノビニルベンゼン（DPAVB）を挙げる事ができる。

【0038】白色の発光を得る発光層としては、特に制限はないが下記のものを用いることができる。

①有機 EL 積層構造体の各層のエネルギー準位を規定し、トンネル注入を利用して発光させるもの（ヨーロッパ公開特許第 0390551 号公報）

②①と同じくトンネル注入を利用する素子で実施例として白色発光素子が記載されているもの（特開平 3-230584 号公報）

③二層構造の発光層が記載されているもの（特開平 2-220390 号公報および特開平 2-216790 号公報）

④発光層を複数に分割してそれぞれ発光波長の異なる材料で構成されたもの（特開平 4-51491 号公報）

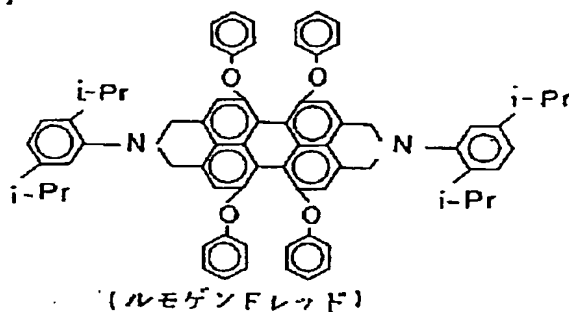
⑤青色発光体（蛍光ピーク 380nm~480nm）と緑色発光体（480nm~580nm）とを積層させ、さらに赤色発光体を含む構成のもの（特開平 6-207170 号公報）

⑥青色発光層が青色蛍光色素を含有し、緑色発光層が赤色蛍光色素を含有した領域を有し、さらに緑色発光体を含む構成のもの（特開平 7-142169 号公報）中でも、⑤の構成のものが好ましく用いられる。ここで、赤色の発光を得る赤色発光体の例を【化 8】に示す。

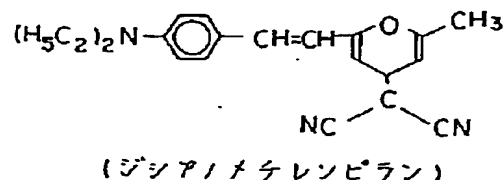
【0039】

【化 8】

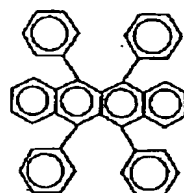
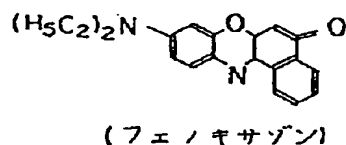
20



30



40



【0040】前記材料を用いて、発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化さ

れ形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜（分子累積膜）とは凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。このようにして、形成される発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるた、通常5nm～5μmの範囲が好ましい。有機EL素子の発光層は以下の機能を併せ持つものである。すなわち、①注入機能；電界印加時に陽極または正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極または電子注入層より電子を注入することができる機能、②輸送機能；注入した電荷（電子と正孔）を電界の力で移動させる機能、③発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能、がある。但し、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また正孔と電子の移動度であらわされる輸送能に大小があてもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

#### 【0041】(2)-3. 正孔注入層

次に、正孔注入層は、必ずしも本発明に用いられる素子に必要なものではないが、発光性能の向上のために用いた方が好ましいものである。この正孔注入層は発光層への正孔注入を助ける層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが、通常5.5eV以下と小さい。このような正孔注入層としては、より低い電界で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6 \text{ V/cm}$ の電界印加時に、少なくとも $10^{-4} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{秒}$ であればなお好ましい。このような正孔注入材料については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものや、EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0042】具体例としては、例えばトリアゾール誘導体（米国特許3, 112, 197号明細書等参照）、オキサジアゾール誘導体（米国特許3, 189, 447号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭37-16096号公報等参照）、ボリアリールアルカン誘導体（米国特許3, 615, 402号明細書、同第3, 820, 989号明細書、同第3, 542, 544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照）、ピラゾリン誘導体およびピラズロン誘導体（米国特許第3, 180, 729号明細書、同第4, 278, 746号明細書、特開昭55-8

8064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第3, 615, 404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照）、アリールアミン誘導体（米国特許第3, 567, 450号明細書、同第3, 180, 703号明細書、同第3, 240, 597号明細書、同第3, 658, 520号明細書、同第4, 232, 103号明細書、同第4, 175, 961号明細書、同第4, 012, 376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1, 110, 518号明細書等参照）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第3, 526, 501号明細書等参照）、オキサゾール誘導体（米国特許第3, 257, 203号明細書等に開示のもの）、スチリルアントラセン誘導体（特開昭56-46234号公報等参照）、フルオレノン誘導体（特開昭54-110837号公報等参照）、ヒドラゾン誘導体（米国特許第3, 717, 462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照）、スチルベン誘導体（特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照）、シラザン誘導体（米国特許第4, 950, 950号明細書）、ポリシラン系（特開平2-204996号公報）、アニリン系重合体（特開平2-282263号公報）、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー（特にチオフエンオリゴマー）等を挙げることができる。正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物（特開昭63-2956965号公報等に開示のもの）、芳香族第三級アミン化合物およびスチリルアミン化合物（米国特許第4, 127, 412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-

119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。また、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(以下NPDPと略記する)、また、特開平4-308688号公報で記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(以下MTDATAと略記する)等を挙げることができる。また、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリデン系化合物の他、p型-Si, p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができる。正孔注入層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm~5μmである。この正孔注入層は、上述した材料の一種または二種以上からなる一層で構成されていてもよいし、または、前記正孔注入層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。また、有機半導体層は、発光層への正孔注入また

は電子注入を助ける層であって、 $10^{-10}$  S/cm以上の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや含アリールアミンオリゴマーなどの導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマーなどの導電性デンドリマーなどを用いることができる。

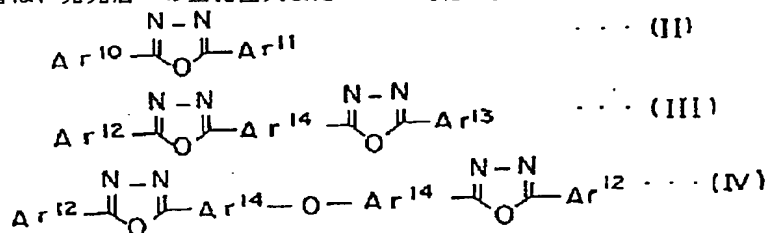
#### 【0043】(2)-4電子注入層

一方電子注入層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入層の中で、特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、例えば8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体、あるいはオキサジアゾール誘導体が好ましく挙げられる。また、付着改善層に用いられる材料としては、特に8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシ(一般に8-キノリノールまたは8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられる。たとえば、発光層に記載したAlqを使用することもできる。一方、オキサジアゾール誘導体としては、

一般式(II), (III) および(IV)

【0044】

【化9】

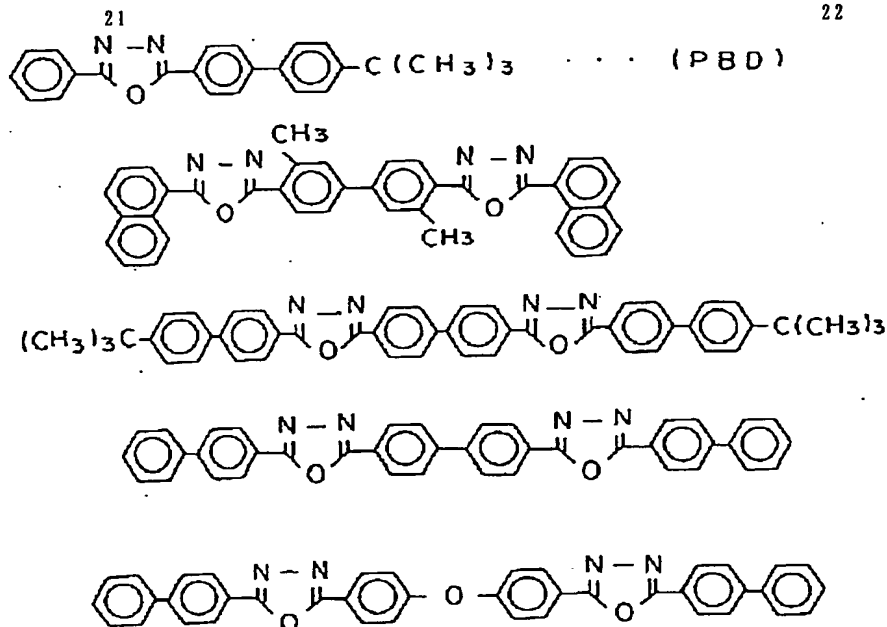


【0045】(式中Ar<sup>10</sup>~Ar<sup>13</sup>はそれぞれ置換または無置換のアリール基を示し、Ar<sup>10</sup>とAr<sup>11</sup>およびAr<sup>12</sup>とAr<sup>13</sup>はそれぞれにおいて互いに同一であっても異なってもよく、Ar<sup>14</sup>置換または無置換のアリレン基を示す。)で表わされる電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基としてはフェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられ、アリレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラセニレン基、ペ

ニレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。上記電子伝達化合物の具体例としては、下記のものを挙げることができる。

【0046】

【化10】



#### 【0047】(2)-5. 陰極

陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム(Al, O<sub>2</sub>)、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。この陰極は、これらの電極物質を蒸着法、スパッタリング法、CVP法、イオンプレーティング法、電析法、電気メッキ法、化学メッキ法などの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、陰極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましく、膜厚は本発明では通常10 nm~100 μm、好ましくは100 nm~10 μm、さらに好ましくは200 nm(0.2 μm)~2 μmの範囲で選択される。この際の上限は、陰極パターンの精細度が増すにつれて加工上小さくする方が容易であるが、有機EL発光装置の低消費電力化(電極の低抵抗化)を鑑みると、上限を特に限定せず、0.2 μm以上とすることがより好ましい。なお、本発明に用いられるEL素子においては、該陽極または陰極のいずれか一方が透明または半透明であることが、発光を透過するため、発光の取り出し効率がよいので好ましい。

#### 【0048】(2)-6. 有機EL素子の作製(例)

以上例示した材料および方法により陽極、発光層、必要に応じて正孔注入層、および必要に応じて電子注入層を形成し、さらに陰極を形成することにより、有機EL素子を作製することができる。また、陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

【0049】以下に支持基板上に陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。まず、適当な基板上に、陽

極材料からなる薄膜を1 μm以下、好ましくは10~200 nmの範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して、陽極を作製する。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スパインコート法、キャスト法、LB法等の方法により行なうことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物(正孔注入層の材料)、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50~450℃、真空度10<sup>-1</sup>~10<sup>-1</sup> torr、蒸着速度0.01~50 nm/sec、基板温度-50~300℃、膜厚5 nm~5 μmの範囲で適宜選択することが好ましい。

【0050】次に正孔注入層上に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有機発光材料を用いて、真空蒸着法、スパッタリング、スパインコート法、キャスト法等の方法により有機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じ様な条件範囲の中から選択することができる。

【0051】次に、この発光層上に電子注入層を設ける。正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は、正孔注入層、発光層と同様条件範囲から選択することができる。

【0052】最後に、陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。陰極は、金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しか

し、下地の有機物層を成膜時の損傷から守るためには、真空蒸着法が好ましい。

【0053】これまで記載してきた有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

【0054】なお、有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を＋、陰極を－の極性にして、5～40Vの電圧を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には、陽極が＋、陰極が－の極性になったときのみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。ここで、平面的に分離配置して発光する有機EL素子を作製するには、ストライプ状の陽極パターンおよび陰極パターンを交差させ、それぞれの電極に直流電圧を印加し、交差部分を発光させるX-Yドットマトリックス方式と陽極または陰極のいずれかをドット状に形成し、TFT (Thin Film Transistor) のようなスイッチング素子にて特定のドット部分だけに直流電圧を印加して発光させるアクティブマトリックス方式が挙げられる。ストライプ状またはドット状の陽極パターンおよび陰極パターンはフォトリソグラフィ法にてエッチングするかリフトオフするか、またはマスキング蒸着等の方法にて形成することができる。

【0055】特に、陽極または陰極の電極パターン（下

部電極パターン）の側面を透光性基板側に向って漸次または段階的に傾斜させるには特開平5-299176号公報、特開平5-217676号公報等によって開示されるように、電極のエッチング条件を制御するか、マスキング蒸着する際に透光性基板とマスクとの距離をとって、電極物質を廻り込ませるようにして形成できる。

#### 【0056】（3）反射層

本発明の反射層は、少なくとも下部電極パターンの側面に配設され、波長400～700nmの可視領域の光を反射する層であればよい。反射率は、通常10%以上、好ましくは50%以上、さらに好ましくは80%以上である。反射層の材料としては、Ag, Al, Au, Cu, Fe, Ge, In, K, Mg, Ba, Na, Ni, Pb, Pt, Si, Sn, W, Zn, Cr, Ti, Mo, ステンレス等の一種以上の金属または合金が挙げられる。また、上記金属の酸化物窒化物、硫化物、硝酸塩、硫酸塩等を用いてもよく、必要に応じて炭素が含有されてもよい。例えばMgO, TiO<sub>2</sub>, BaSO<sub>4</sub>等が挙げられる。前記材料は、そのままの膜として反射層としてもよいし、前記材料を微粒子化して、適当なバインダー樹脂に分散された状態で反射層としてもよい。ここで主な材料の膜面反射率を表1に示す。

【0057】

【表1】

金属	反射率（波長／nm）	金属	反射率（波長／nm）
Ag	97.9%（500）	Na	98.2%（546）
Al	91.6%（546）	Ni	54.6%（440）
Au	50.4%（500）	Ni	60.7%（540）
Cu	62.5%（500）	Pb	67.5%（700）
Fe	60.7%（570）	Pt	59.1%（589）
Ge	46.6%（516）	Si	37.5%（515）
In	51.5%（500）	W	43.1%（472）
K	88.6%（546）	Zn	82.5%（545）
Mg	84.3%（546）		

【0058】これらの金属の反射率は、ある波長に限定しているが、波長400～700nmの領域で大きく変化するものでもない。なお、下部電極の膜厚が大きくなるほど反射層の効果が大きくなり、好ましくは0.2μm以上、より好ましくは0.5μm以上の時である。反射層の膜厚は、波長400～700nmの可視領域の光を所望の反射率で反射する機能を損なわないならば、特に制限はない。

#### 【0059】（4）平坦化層

本発明の平坦化層は、側面に反射層を有する下部電極パターン間の空隙に充填され、下部電極とその空隙により形成される凹凸を緩和して、平坦化する。平坦化層の材

料としては、反射層に記載した材料でもよいし、以下の樹脂層でもよい。樹脂層としては、例えば、光硬化型樹脂および／または熱硬化型樹脂のように、アクリレート系、メタクリレート系の反応性ビニル基を有するものの硬化物を挙げることができる。また、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマー、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を挙げることができる。また、各種フッ

素ポリマーも挙げることができる。これらの樹脂は前記反射性としても、また後述する遮光性の材料のバインダー樹脂としても用いることができる。

【0060】また、金属酸化物層とする場合、具体的には、酸化ケイ素 ( $\text{SiO}_2$ )、酸化アルミニウム ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )、酸化チタン ( $\text{TiO}_2$ )、酸化イットリウム ( $\text{Y}_2\text{O}_3$ )、酸化ゲルマニウム ( $\text{GeO}_2$ )、酸化亜鉛 ( $\text{ZnO}$ )、酸化マグネシウム ( $\text{MgO}$ )、酸化カルシウム ( $\text{CaO}$ )、ほう酸 ( $\text{B}_2\text{O}_3$ )、酸化ストロンチウム ( $\text{SrO}$ )、酸化バリウム ( $\text{BaO}$ )、酸化鉛 ( $\text{PbO}$ )、ジルコニア ( $\text{ZrO}_2$ )、酸化ナトリウム ( $\text{Na}_2\text{O}$ )、酸化リチウム ( $\text{Li}_2\text{O}$ )、酸化カリウム ( $\text{K}_2\text{O}$ )、酸化タリウム ( $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ) 等を挙げることができる。また、窒化物層としては窒化ケイ素 ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) 等が挙げられる。

【0061】なお、以上の反射層または平坦化層はどちらか少なくとも一方が電氣的に絶縁性である必要がある。抵抗率は、 $10^4 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上、好ましくは  $10^5 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上である。 $10^4 \Omega \cdot \text{cm}$ 未満では、下部電極間に電氣的な導通（短絡）が起こり、有機EL発光装置の表示欠陥の原因となる。

【0062】また、前記反射層および／または平坦化層の波長400～700nmの可視領域における光の透過率が10%以下であれば好ましく、1%以下であればさらに好ましい。10%を超えると有機物層からの光および上部電極パターンとの間の間隙からの光を十分に遮断できず、コントラストのよい表示を得るという面では不十分となる。

【0063】具体的な材料としては、前記材料の他に、カーボンブラック、チタンブラック、アニリンブラック等の種々の顔料を、前記反射層又は絶縁層の材料に含ませるか、単に、バインダー樹脂中に分散させてもよく、前記機能を満たすものならば、特に制限はない。

【0064】前記反射層又は平坦化層は、金属、金属酸化物、金属窒化物等の材料の場合は、下部電極と同じように、蒸着法、スパッタリング法、CVD法、イオンプレーティング法、電析法、電気メッキ法、化学メッキ法によって成膜し、フォトリソグラフィ法にて、エッチング又はリフトオフして所望のパターンで選択的に下部電極パターンの側面に配置したり、下部電極パターンの間隙に充填することができる。

【0065】また、樹脂顔料の場合は、スピンコート、ロールコート、キャスト法等の方法で成膜し、フォトリソグラフィ法を用いてパターンニング又はエッチングして、所望のパターンで選択的に下部電極パターンの側面に配置したり、下部電極パターンの間隙に充填することができる。また、フォトリソグラフィ法の代わりにスクリーン印刷、オフセット印刷等の印刷手法にて、直接反射層又は平坦化層が形成できる。特に、反射層と平坦化層を形成する簡便な方法として、下部電極パター

ンの間の間隙に導電性の反射層5を形成する場合において、下部電極パターン2の間の絶縁を取るために、反射層の中間部分を選択的に電気化学的な陽極酸化を行ったり、酸素プラズマ等の方法を行って金属を絶縁化する方法が挙げられる（図5）。この際、反射層が導電性であるので、その反射層は、下部電極の抵抗値を下げる補助電極にもなりうる。下部電極パターンとその間隙の凹凸をさらに平坦化するために、反射層又は平坦化層が充填された後、表面を研磨する方法が挙げられる。

【0066】

【実施例】以下、本発明を実施例によってさらに具体的に説明する。

【0067】【実施例1】透光性基板として100mm×100mm×1.1mm厚のガラス基板（コーニング7059）上に、スパッタリングにより0.20μm膜厚、表面抵抗15Ω/□のITO（インジウム錫酸化物）の下部電極（陽極）を成膜した。次に、ポジ型のフォトリソ（富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製HPR204）をITO上にスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、250μmライン50μmギャップのストライプ状のレジストパターンが得られるマスクを介し、100mJ/cm<sup>2</sup>で露光した。次に、2.38% TMAH（テトラメチルアンモニウムヒドロキシド）水溶液にてレジストを現像し、130℃にてポストベークし、レジストパターンを形成した。次に、基板を47%臭化水素酸水溶液に浸漬し、露出したITOをエッチングした。次に、Ag（銀）を蒸着により0.20μm膜厚で成膜して積層し、レジストを剥離液（長瀬産業社製N303）にて剥離して、下部電極上のAgをリフトオフした。その結果、下部電極パターン間の間隙に銀が充填された基板を得た。次に、ポジ型のフォトリソ（前出）を基板上にスピンコートし、80℃でベークした後、露光機にて、280μmライン20μmギャップのストライプ状のレジストパターンが得られるマスクを介し、下部電極パターンに位置合わせして、100mJ/cm<sup>2</sup>で露光した。次に、2.38% TMAH水溶液にてレジストを現像し、130℃にてポストベークし、レジストパターンを形成した。次に、無水クロム酸40g、濃硫酸20ml、純水2リットルの組成からなるエッチャントに基板を浸漬して、露出しているAgをエッチングし、前と同様にレジストを剥離した。ここで、同条件で作製した基板を断面SEM（Scanning Electron Microscopy）にて観察したところ、下部電極のパターンの側面は、ほぼ垂直であり、下部電極パターンの両側の側面に15μm幅で反射層のAgが配置されていた。また、このAg膜は、0.20μm膜厚でも分光光度計によると波長400～700nmの可視領域における光の透過率は10%以下であった。次に、この基板をIPA洗浄、UV洗浄した後、蒸着装置（日本真空技術製）の基板ホルダーに固定した。蒸着源は、モ

リブテン製の抵抗加熱ボートに正孔注入材料としてMTDATA及びNPD、発光材料としてDPVBi、ドーパントとしてDPAVB、電子注入材料としてAlqをそれぞれ仕込み、陰極の第二金属としてAgをタングステン製フィラメントに、陰極の電子注入性金属としてMgをモリブテン製ボートに装着した。その後、真空槽を $5 \times 10^{-1}$  torrまで減圧後、以下の順序で順次積層していった。正孔注入層から陰極まで途中で真空を破らず一回の真空引きで行った。まず正孔注入層としては、MTDATAを蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 \text{ nm/s}$ 、膜厚200 nm、NPDを蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 \text{ nm/s}$ 、膜厚20 nm、発光層としてはDPVBiを蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 \text{ nm/s}$ 、DPAVBを蒸着速度 $0.05 \text{ nm/s}$ で同時蒸着して併せて膜厚40 nm（ホスト材料に対するドーパントの重量比は $1.2 \sim 1.6$ ）とし、電子注入層としては、Alqを蒸着速度 $0.1 \sim 0.3 \text{ nm/s}$ 、膜厚20 nm、上部電極（陰極）としては、下部電極（陽極）ストライプパターンに対し垂直とし、 $600 \mu\text{m}$ ライン、 $100 \mu\text{m}$ ギャップのストライプパターンになるようなマスクを介して、MgとAgを同時蒸着した。すなわち、Mgは、蒸着速度 $1.3 \sim 1.4 \text{ nm/s}$ 、Agは、蒸着速度 $0.1 \text{ nm/s}$ で膜厚を200 nmとした。このようにして、有機EL発光装置を作製し（図1）、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、発光装置全体の輝度分布およびCIE色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ $100 \pm 10 \text{ cd/m}^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ 前後で青色の発光が得られ、光のにじみの少ない有機EL発光装置を得ることができた。

【0068】〔実施例2〕透光性基板として $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm} \times 1.1 \text{ mm}$ 厚のガラス基板（コーニング7059）上に、スパッタリングにより $0.20 \mu\text{m}$ 膜厚、表面抵抗 $15 \Omega/\square$ のITO（インジウム錫酸化物）の下部電極（陽極）を成膜した。次に、ポジ型のフォトリソスト（前出）をITO上にスピコートし、室温で風乾した後、露光機にて、 $250 \mu\text{m}$ ライン $50 \mu\text{m}$ ギャップのストライプ状のレジストパターンが得られるマスクを介し、 $100 \text{ mJ/cm}^2$ で露光した。次に、 $2.38\%$  TMAH水溶液にてレジストを現像して、レジストパターンを形成した。以下、実施例1と同一の条件で、ITOをエッチングし、Ag成膜、リフトオフ、レジストパターンニング、Agエッチング、レジスト剥離を行った。ここで、同条件で作製した基板を断面SEMにて観察したところ、下部電極のパターンの両側の側面は、透光性基板に向って漸次又は段階的に拡大しており（テーパー状になっており）、テーパー角は、 $10.5$ 度であった。また、下部電極パターンの側面に $15 \mu\text{m}$ 幅で反射層のAgが配置されていた。また、このAg膜は、 $0.20 \mu\text{m}$ 膜厚でも分光光度計によると、

波長 $400 \sim 700 \text{ nm}$ の可視領域における光の透過率は $10\%$ 以下であった。以下、実施例1と同一の条件で有機EL発光装置を作製し（図2）、直流8Vの電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、発光装置全体の輝度分布およびCIE色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ $120 \pm 10 \text{ cd/m}^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ 前後で青色の発光が実施例1より高輝度で得られ、光のにじみの少ない有機EL発光装置を得ることができた。また、クロストーク等の発光欠陥は、実施例1に比べて少なくなった。

【0069】〔実施例3〕透光性基板として $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm} \times 1.1 \text{ mm}$ 厚のガラス基板（コーニング7059）上に、スパッタリングにより $0.20 \mu\text{m}$ 膜厚、表面抵抗 $15 \Omega/\square$ のITO（インジウム錫酸化物）の下部電極（陽極）を成膜した。次に、ポジ型のフォトリソスト（前出）をITO上にスピコートし、 $80^\circ\text{C}$ でベークした後、露光機にて、 $250 \mu\text{m}$ ライン $50 \mu\text{m}$ ギャップのストライプ状のレジストパターンが得られるマスクを介し、 $100 \text{ mJ/cm}^2$ で露光した。次に、 $2.38\%$  TMAH水溶液にてレジストを現像して、レジストパターンを形成した。次に、基板を $47\%$  臭化水素酸水溶液に浸漬し、露出したITOをエッチングした。次に、Al（アルミニウム）を蒸着により $0.20 \mu\text{m}$ 膜厚で成膜して積層し、下部電極パターン上のアルミニウムをリフトオフした。その結果、下部電極パターンの間の間隙にAlが充填された基板を得た。次に、ポジ型のフォトリソスト（前出）を基板上にスピコートし、 $80^\circ\text{C}$ でベークした後、露光機にて、 $280 \mu\text{m}$ ライン $20 \mu\text{m}$ ギャップのストライプ状のレジストパターンが得られるマスクを介し、下部電極パターンに位置合わせして、 $100 \text{ mJ/cm}^2$ で露光した。次に、 $2.38\%$  TMAH水溶液にてレジストを現像し、 $130^\circ\text{C}$ にてポストベークし、レジストパターンを形成した。次に、 $0.1 \text{ mol/l}$ の酒石酸アンモニウム水溶液とエチレングリコールを $1:9$ の容量比で混合し、それに少量のアンモニア水溶液を添加してpHを $7.0$ に調節した化成液を調製し、基板を陽極に、白金メッシュを陰極として化成液に浸漬し、露出しているアルミニウムの陽極酸化を行った。なお、 $200 \text{ V}$ まで電圧を $1 \text{ mA/cm}^2$ の定電流制御しつつ徐々に印加し化成液の温度は、 $40 \sim 50^\circ\text{C}$ に保った。電流がほとんど流れなくなったことを確認してから、レジストを剥離液（前出）にて剥離した。ここで、同条件で作製した基板を断面SEMにて観察したところ、下部電極のパターンの側面は、ほぼ垂直であり、下部電極パターンの両側の側面に $15 \mu\text{m}$ 幅で反射層のアルミニウムが配置され、反射層の間には、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>（酸化アルミニウム）の平坦化層が充填された。その結果、下部電極パターンと、その間隙による凹凸が平坦化された（図5）。また、このAl



膜は、 $0.20\mu\text{m}$ 膜厚でも分光光度計によると、波長  $400\sim700\text{nm}$  の可視領域における光の透過率は  $10\%$  以下であった。以下、実施例 1 と同一の条件で有機 EL 発光装置を作製し（図 3）、直流  $8\text{V}$  の電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、発光装置全体の輝度分布および CIE 色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ  $100\pm10\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は  $x=0.16$ 、 $y=0.24$  前後で青色の発光が得られ、光のにじみの少ない有機 EL 発光装置を得ることができた。また、クロストーク等の発光欠陥は、実施例 1 に比べて少なくなった。

【0070】【実施例 4】透光性基板として  $100\text{mm}\times100\text{mm}\times1.1\text{mm}$  厚のガラス基板（コーニング 7059）上に、スパッタリングにより  $0.20\mu\text{m}$  膜厚、表面抵抗  $15\Omega/\square$  の ITO（インジウム錫酸化物）の下部電極（陽極）を成膜した。次に、ポジ型のフォトリソ（前出）を ITO 上にスピンコートし、 $80^\circ\text{C}$  でベークした後、露光機にて、 $250\mu\text{m}$  ライン  $50\mu\text{m}$  ギャップのストライプ状のレジストパターンが得られるマスクを介し、 $100\text{mJ}/\text{cm}^2$  で露光した。次に、 $2.38\%$  TMAH 水溶液にてレジストを現像して、レジストパターンを形成した。次に、基板を  $47\%$  臭化水素酸水溶液に浸漬し、露出した ITO をエッチングし、レジストを剥離液（長瀬産業社製 N303）にて剥離した。次に、スパッタリングにより  $0.20\mu\text{m}$  膜厚の Cr（クロム）を成膜した。次に、ポジ型のフォトリソ（前出）を Cr 上にスピンコートし、 $80^\circ\text{C}$  でベークした後、露光機にて、 $30\mu\text{m}$  ライン  $270\mu\text{m}$  ギャップのストライプ状のレジストパターンが下部電極パターンの間に得られるマスクを介し、 $100\text{mJ}/\text{cm}^2$  で露光した。次に、 $2.38\%$  TMAH 水溶液にてレジストを現像して、レジストパターンを形成した。次に、基板を硝酸第二セリウムアンモニウム  $165\text{g}$ 、 $70\%$  重量％過塩素酸  $42\text{ml}$ 、純水  $1$  リットルの組成からなるエッチャントに浸漬し、露出した Cr をエッチングし、レジストを剥離液（前出）にて剥離した。その結果、下部電極パターン間の間隙に平坦化層の Cr が充填された基板を得たが、下部電極と平坦化層の間に  $10\mu\text{m}$  程度の間隙が開いている。次に、 $30\%$  重量％（対固形分）の Al 粉末を分散したアクリレート系光硬化型レジスト（新日鐵科学社製 V259PA）を用いて、スピンコートし  $80^\circ\text{C}$  でベークした。次に、基板を、高圧水銀灯を光源とする露光機にセットし、下部電極と平坦化層の間の位置をマスクを用いて選択的に  $600\text{mJ}/\text{cm}^2$ （ $365\text{nm}$ ）で露光した。次に、 $1\%$  炭酸ナトリウム水溶液で  $2$  分間室温現像後、 $200^\circ\text{C}$  でベークして下部電極と平坦化層の間隙にアルミニウムを分散したアクリル樹脂の反射層を形成した。さらに、基板表面をテーパー研磨機（サンシン製 SSP-400）にセットし、 $20000$  番（メッシュ）の研磨テープ（住友スリーエム

社製ラッピングフィルム）にて研磨した。ここで、同条件で作製した基板を断面 SEM にて観察したところ、下部電極のパターンの側面は、ほぼ垂直であり、また、下部電極パターンの両側の側面に  $10\mu\text{m}$  幅で反射層の Al を分散したアクリル樹脂が配置され、反射層の間には、Cr の平坦化層が充填された。その結果、下部電極パターンと、その間隙による凹凸が平坦化された。また、この Cr 膜は、 $0.20\mu\text{m}$  膜厚でも分光光度計によると、波長  $400\sim700\text{nm}$  の可視領域における光の透過率は  $10\%$  以下であった。以下、実施例 1 と同一の条件で有機 EL 発光装置を作製し（図 4）、直流  $8\text{V}$  の電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、発光装置全体の輝度分布および CIE 色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ  $100\pm10\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は  $x=0.16$ 、 $y=0.24$  前後で青色の発光が得られ、ここで、遮光性の平坦化層を配置したため、光のにじみのない有機 EL 発光装置を得ることができた。また、クロストーク等の発光欠陥は、実施例 1 に比べて少なくなった。

【0071】【実施例 5】透光性基板として  $100\text{mm}\times100\text{mm}\times1.1\text{mm}$  厚のガラス基板（コーニング 7059）上に、スパッタリングにより  $0.50\mu\text{m}$  膜厚、表面抵抗  $5\Omega/\square$  の ITO（インジウム錫酸化物）の下部電極（陽極）を成膜した。次に、ポジ型のフォトリソ（前出）を ITO 上にスピンコートし、 $80^\circ\text{C}$  でベークした後、露光機にて、 $250\mu\text{m}$  ライン  $50\mu\text{m}$  ギャップのストライプ状のレジストパターンが得られるマスクを介し、 $100\text{mJ}/\text{cm}^2$  で露光した。次に、 $2.38\%$  TMAH 水溶液にてレジストを現像し、 $130^\circ\text{C}$  にてポストベークし、レジストパターンを形成した。次に、基板を  $47\%$  臭化水素酸水溶液に浸漬し、露出した ITO をエッチングした。次に、Ag を蒸着により  $0.50\mu\text{m}$  膜厚で成膜して積層し、レジストを剥離液（前出）にて剥離して、下部電極上の Ag をリフトオフした。その結果、下部電極パターン間の間隙に Ag が充填された基板を得た。次に、ポジ型のフォトリソ（前出）を基板上にスピンコートし、 $80^\circ\text{C}$  でベークした後、露光機にて、 $280\mu\text{m}$  ライン  $20\mu\text{m}$  ギャップのストライプ状のレジストパターンが得られるマスクを介し、下部電極パターンに位置合わせして、 $100\text{mJ}/\text{cm}^2$  で露光した。次に、 $2.38\%$  TMAH 水溶液にてレジストを現像し、 $130^\circ\text{C}$  にてポストベークし、レジストパターンを形成した。次に、無水クロム酸  $40\text{g}$ 、濃硫酸  $20\text{ml}$ 、純水  $2$  リットルの組成からなるエッチャントに基板を浸漬して、露出している Ag をエッチングし、前と同様にレジストを剥離した。ここで、同条件で作製した基板を断面 SEM にて観察したところ、下部電極のパターンの側面は、ほぼ垂直であり、下部電極パターンの両側の側面に  $15\mu\text{m}$  幅で反射層の Ag が配置されていた。以下実施例 1 と同一の条件で有機 EL

発光装置を作製し（図 1）、直流 8 V の電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、発光装置全体の輝度分布および CIE 色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ  $110 \pm 5 \text{ cd/m}^2$ 、色度は  $x = 0.16$ 、 $y = 0.24$  前後で青色の発光が得られ、光のにじみの少ない有機 EL 発光装置を得ることができた。また、ITO の膜厚を厚くして抵抗値を下げたため、実施例 1 よりも、輝度が上昇し、さらに輝度むらの少ない有機 EL 発光装置を得ることができた。

【0072】【比較例 1】実施例 1 において、反射層を形成しなかったこと以外は同一の条件で有機 EL 発光装置（図 7）を作製した。この有機 EL 発光装置に直流 8 V の電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、発光装置全体の輝度分布および CIE 色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ  $80 \pm 10 \text{ cd/m}^2$ 、色度は  $x = 0.16$ 、 $y = 0.24$  前後で青色の発光が得られた。但し、反射層がないため、実施例 1 に比べて輝度が小さくなり、かつ、光のにじみが発生し、実施例 1 に比べてコントラストの悪い表示となった。

【0073】【比較例 2】透光性基板として  $100 \text{ mm} \times 100 \text{ mm} \times 1.1 \text{ mm}$  厚のガラス基板（コーニング 7059）上に、スパッタリングにより  $0.20 \mu\text{m}$  膜厚、表面抵抗  $15 \Omega/\square$  の ITO（インジウム錫酸化物）の下部電極（陽極）を成膜した。次に、ポジ型のフォトリソ（前出）を ITO 上にスピンコートし、 $80^\circ\text{C}$  でベークした後、露光機にて、 $250 \mu\text{m}$  ライン  $50 \mu\text{m}$  ギャップのストライプ状のレジストパターンが得られるマスクを介し、 $100 \text{ mJ/cm}^2$  で露光した。次に、 $2.38\%$  TMAH 水溶液にてレジストを現像し、 $130^\circ\text{C}$  にてポストベークし、レジストパターンを形成した。次に、基板を  $47\%$  臭化水素酸水溶液に浸漬し、露出した ITO をエッチングした。次に、遮光性の Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>（酸化タリウム）をスパッタリングにより  $0.20 \mu\text{m}$  膜厚で成膜して積層し、レジストを剥離液（長瀬産業社製 N303）にて剥離して、下部電極上の Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> をリフトオフした。その結果、下部電極パターンの間隙に Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> が充填された基板を得た。ここ

で、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 膜は、 $0.20 \mu\text{m}$  膜厚でも分光光度計によると、波長  $400 \sim 700 \text{ nm}$  の可視領域における光の透過率は  $10\%$  以下であった。以下実施例 1 と同一の条件で、有機 EL 発光装置を作製した。この有機 EL 発光装置に直流 8 V の電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、発光装置全体の輝度分布および CIE 色度座標（JIS Z 8701）はそれぞれ  $80 \pm 10 \text{ cd/m}^2$ 、色度は  $x = 0.16$ 、 $y = 0.24$  前後で青色の発光が得られた。Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> は遮光性はあるため、光のにじみは少ないが、反射層がないため、実施例 1 に比べて輝度が小さくなった。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の第一の実施の形態を模式的に示す断面図である。

【図 2】本発明の第二の実施の形態を模式的に示す断面図である。

【図 3】本発明の第三の実施の形態を模式的に示す断面図である。

【図 4】本発明の第四の実施の形態を模式的に示す断面図である。

【図 5】本発明に用いられる反射層および平坦化層を形成する方法を段階的に示す断面図である。

【図 6】従来の有機 EL 発光装置（X-Y ドットマトリックス型）を示す説明図である。

【図 7】従来の有機 EL 発光装置（下部電極として透明電極を使用）を示す断面図である。

【図 8】従来の無機 EL 発光装置の一例を示す断面図である。

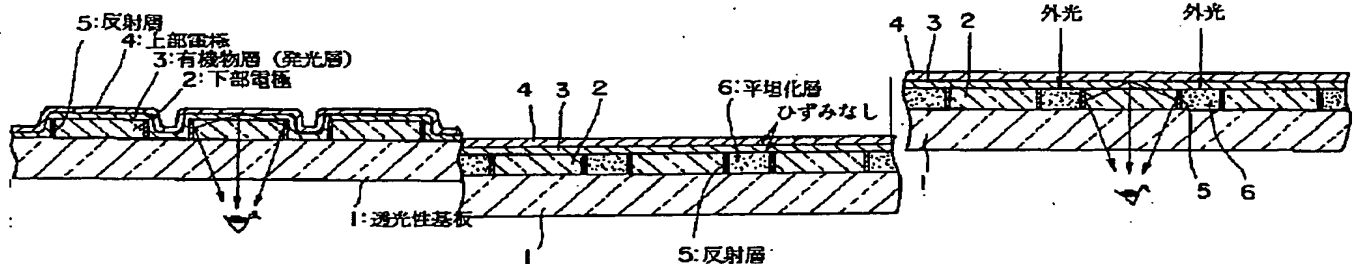
【符号の説明】

- 1 透光性基板
- 2 下部電極（パターン）
- 3 有機物層（発光層）
- 4 上部電極（パターン）
- 5 反射層
- 6 平坦化層
- 7 反射性金属（導電性）
- 8 フォトリソ

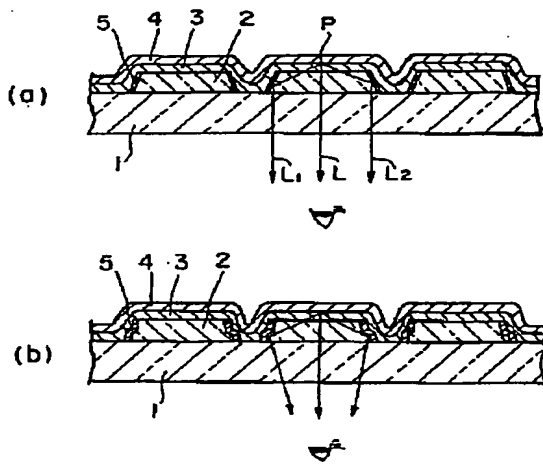
【図 1】

【図 3】

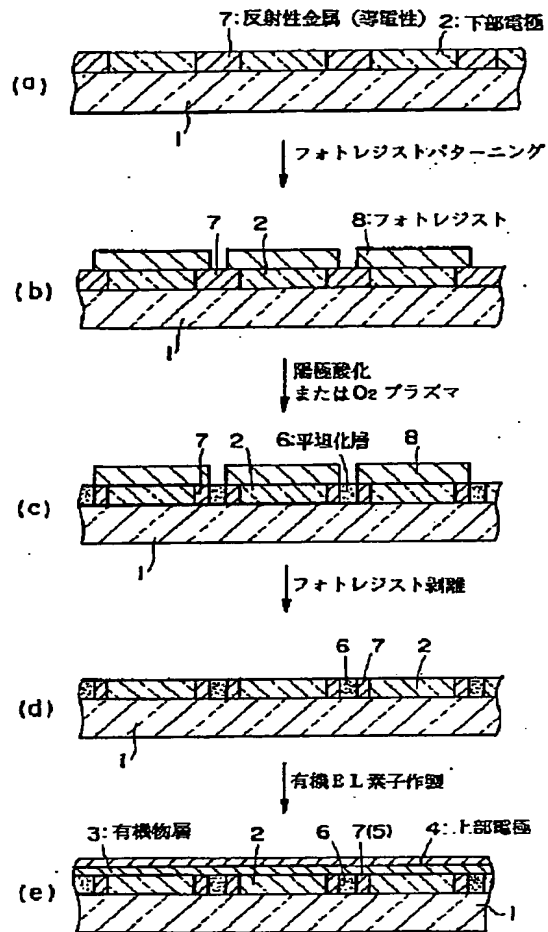
【図 4】



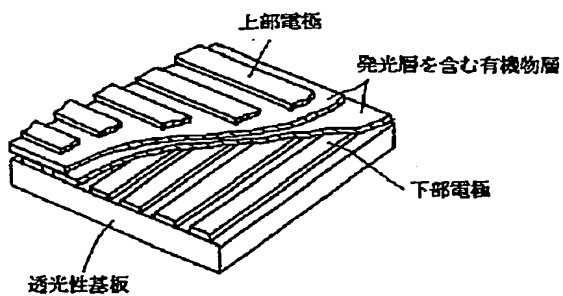
【図 2】



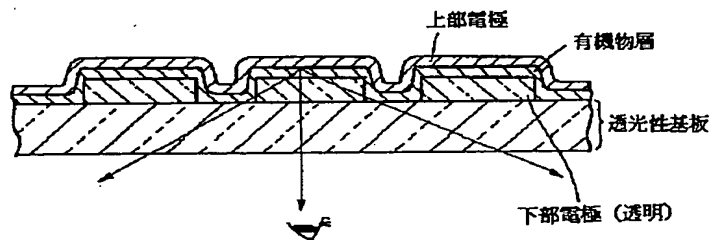
【図 5】



【図 6】



【図 7】



【図 8】

